



#4

PATENT
Attorney Docket No. 401471/CHISSO

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of:

SAKAMOTO ET AL

Application No. 10/002,620

Filed: December 5, 2001

Art Unit: Unassigned

Examiner: Unassigned

For: FERTILIZER, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME,
PROCESS FOR CONTROLLING INORGANIZING SPEED OF
UREA/ALIPHATIC ALDEHYDE CONDENSATION
PRODUCT, AND PROCESS FOR GROWING CROPS

CLAIM OF PRIORITY

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Dear Sir:

In accordance with the provisions of 35 USC 119, Applicants claim the priority of the application or the applications (if more than one application is set out below):

Application No. 2000-370488, filed in Japan on December 5, 2000;

Application No. 2001-52465, filed in Japan on February 27, 2001;

Application No. 2001-111208, filed in Japan on April 10, 2001;

Application No. 2001-353340, filed in Japan on November 19, 2001 and

Application No. 2001-357799, filed in Japan on November 22, 2001.

Certified copies of the above-listed priority documents are enclosed.

Respectfully submitted,

LEYDIG, VOIT & MAYER, LTD.

Leah C. Oubre

Registration No. 44,990

Suite 300
700 Thirteenth Street, N.W.
Washington, D.C. 20005
Telephone: (202) 737-6770
Facsimile: (202) 737-6776
Date: 2/5/02
LCO:etp



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日
Date of Application:

2000年12月 5日

出 願 番 号
Application Number:

特願2000-370488

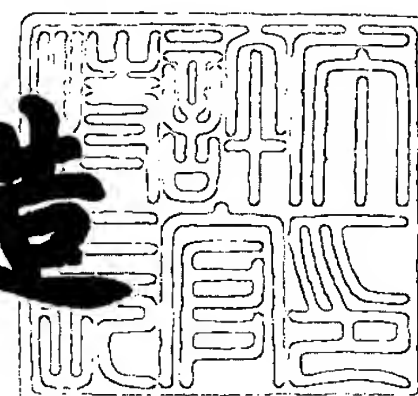
出 願 人
Applicant(s):

チッソ株式会社

2001年12月 7日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3107484

【書類名】 特許願

【整理番号】 750154

【提出日】 平成12年12月 5日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C05G 3/00
C05G 5/00

【発明者】

 【住所又は居所】 熊本県水俣市古賀町二丁目 8 番 1 号

 【氏名】 坂本 淳

【特許出願人】

 【識別番号】 000002071

 【氏名又は名称】 チッソ株式会社

 【代表者】 後藤 舜吉

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 012276

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 肥 料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 く溶性リン酸と尿素－アルデヒド縮合物とを含有する肥料。

【請求項 2】 く溶性リン酸の含有割合が、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して P_2O_5 換算で 0.01～5 重量%の範囲である請求項 1 記載の肥料。

【請求項 3】 水溶性リン酸の含有割合が、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して P_2O_5 換算で 0.5 重量%以下である請求項 1 または 2 記載の肥料。

【請求項 4】 尿素－脂肪族アルデヒド縮合物が 2－オキソ－4－メチル－6－ウレイドヘキサヒドロピリミジンである請求項 1～3 何れか 1 項記載の肥料。

【請求項 5】 その形状が粒子状である請求項 1～4 の何れか 1 項記載の肥料。

【請求項 6】 粒径が 1～50 mm の範囲である請求項 5 記載の肥料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は肥料に関する。

【0002】

【従来の技術】

緩効性肥料として使用される尿素－脂肪族アルデヒド縮合物は水に難溶性化合物であり、土壤中で徐々に溶解し分解無機化することから、作物に持続的に窒素成分を供給できる肥料として普及している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、土壤中に施肥した尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化速度は、一般的に施肥後から徐々に低下していき、ある時期以降は無機化が非常に遅くなり、肥料としての効果がほとんどなくなる場合があった。

【0004】

【課題を解決しようとする手段】

本発明者らは上記従来技術が包含する問題点に鑑み鋭意研究を重ねた。その結

果、く溶性リン酸と尿素－脂肪族アルデヒド縮合物とを含有する肥料であれば、全肥効期間に亘って尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化速度が低下しにくいことを見出し、この知見に基づいて本発明を完成した。

【 0 0 0 5 】

以上の記述から明らかなように本発明の目的は、全肥効期間に亘って尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化速度が低下しにくい尿素－脂肪族アルデヒド縮合物含有肥料を提供することである。

【 0 0 0 6 】

本発明は下記の（１）～（６）で構成される。

（１）く溶性リン酸および尿素－脂肪族アルデヒド縮合物を含有する肥料。

【 0 0 0 7 】

（２）く溶性リン酸の含有割合が、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して 0.01～5 重量％（ P_2O_5 換算）の範囲である前記第 1 項記載の肥料。

【 0 0 0 8 】

（３）水溶性リン酸の含有割合が、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して 0.5 重量％（ P_2O_5 換算）以下である前記第 1 項または第 2 項記載の肥料。

【 0 0 0 9 】

（４）尿素－脂肪族アルデヒド縮合物が 2－オキソー 4－メチルー 6－ウレイドヘキサヒドロピリミジンである前記第 1 項～第 3 項何れか 1 項記載の肥料。

【 0 0 1 0 】

（５）その形状が粒子状である前記第 1 項～第 4 項の何れか 1 項記載の肥料。

【 0 0 1 1 】

（６）粒径が 1～50 mm の範囲である前記第 5 項記載の肥料。

【発明の実施の形態】

【 0 0 1 2 】

本発明に必須の成分であるく溶性リン酸とは、中性の水には溶解せず、2％（ $g/100ml$ ）クエン酸水溶液に溶解するリン酸成分であり、リン酸 2 カルシウム、リン酸 3 カルシウム、リン酸 4 カルシウム、アパタイト、リン酸カルシウムナトリウム、4 リン酸 5 カルシウム 2 ナトリウム、ケイリン酸カルシウム類、

リン酸 2 マグネシウム、リン酸アンモニウムマグネシウム、リン酸 3 カルシウム - 3 マグネシウム、リン鉱石、過リン酸石灰、マグネシウム過リン酸、アンモニア化過リン酸石灰、熔成リン肥、トーマスリン肥、焼リン、重焼リン、および腐植酸リン肥などに含まれる。

【 0 0 1 3 】

本発明の肥料がく溶性リン酸を含有するものとなるための方法は特に限定されるものではないが、例えば、本発明の肥料が前述のく溶性リン酸を含有する物質から選ばれた 1 種以上を含有すれば良い。

【 0 0 1 4 】

前述のく溶性リン酸を含有する物質の中には、水溶性リン酸を含有するものもある。水溶性リン酸が本発明にある程度以上存在すると、本発明の効果を損なう場合があることから、本発明に使用するく溶性リン酸を含有する物質は、水溶性リン酸を含有しないか、含有する場合であっても極少量であるものが好ましく、具体的にはリン鉱石および熔成リン肥を挙げることができる。

【 0 0 1 5 】

本発明の肥料に含有されるく溶性リン酸の割合は、尿素 - 脂肪族アルデヒド縮合物に対し、 P_2O_5 換算で 0.01 ~ 5 重量% の範囲であることが好ましい。該割合が 0.01 重量% 以上であれば無機化速度の低下を実用上十分に抑えることができる。一方、該割合が 5 重量% を越えても本発明の効果が顕著に伸びることはない。

【 0 0 1 6 】

本発明の肥料に含まれるく溶性リン酸の量は、詳解肥料分析法（（株）養賢堂発行第二改訂）に記載のキノリン重量法、キノリン容量法、バナドモリブデン酸アンモニウムの何れかの方法によって測定することができる。

【 0 0 1 7 】

本発明の肥料に含まれる尿素 - 脂肪族アルデヒド縮合物の含有割合は、該肥料に対して 10 ~ 99.7 重量% の範囲であることが好ましく、より好ましくは 50 ~ 99.7 重量% の範囲である。

【 0 0 1 8 】

本発明の肥料は、本発明の効果を損なわない範囲であれば、肥料成分、各種造粒助剤、結合材などその他の成分を含有するものであっても良い。

【 0 0 1 9 】

その他の成分としての肥料成分としては、尿素、硫安、塩安、硝安、石灰窒素、腐植酸アンモニア等の窒素質肥料、硫酸グアニル尿素、オキサミド等の化学合成系緩効性肥料、硫酸加里、塩化加里、重炭酸加里、腐植酸加里、珪酸加里等の加里肥料、骨粉、油かす、肉かす等の有機質肥料、普通化成肥料、二成分複合成肥料、高度化成肥料、石灰質肥料、苦土質肥料、ケイ酸質肥料、微量元素肥料等を挙げることができる。

【 0 0 2 0 】

造粒助剤としては、ベントナイト、クレイ、カオリン、セリサイト、タルク、酸性白土、軽石、珪砂、珪石、ゼオライト、パーライト、バーミキュライト等の鉱物質、モミガラ、オガクズ、木質粉、パルプフロック、大豆粉等の植物質を挙げることができる。

【 0 0 2 1 】

結合材としては、アラビアゴム、アルギン酸ナトリウム、グリセリン、ゼラチン、糖蜜、微結晶セルロース、ピッチ、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリビニルピロリドン、アルミナゾル、セメント、ポリリン酸ナトリウム、リグニンスルホン酸塩、ポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール、界面活性剤、デンプン、流動パラフィン、熱硬化性樹脂原料等を挙げることができる。

【 0 0 2 2 】

なお、前述のように水溶性リン酸が本発明にある程度以上存在すると、本発明の効果を損なう場合があることから、本発明の肥料に含まれる水溶性リン酸の含有割合は、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して、 P_2O_5 換算で 0.5 重量% 以下であることが好ましい。

【 0 0 2 3 】

本発明に必須の尿素－脂肪族アルデヒド縮合物は特に限定されるものではなく

、直鎖状、分岐のある鎖状、環状などの何れの分子構造を持つものであっても良い。具体的には、尿素－ホルムアルデヒド縮合物、尿素－アセトアルデヒド縮合物、尿素－イソブチルアルデヒド縮合物などを挙げることができる。本発明においてはそれらのうち1種以上を任意に選択し使用すればよい。

【 0 0 2 4 】

前述の尿素－脂肪族アルデヒド縮合物のうち、尿素－アセトアルデヒド縮合物である2－オキソ－4－メチル－6－ウレイドヘキサヒドロピリミジン（以下「CDU」と記述する。）は、土壤に施用後ある時期以降の無機化速度の低下が特に顕著であることから、CDUを本発明の肥料に使用した場合には本発明の効果がより大きい。

【 0 0 2 5 】

本発明の肥料は、スラリー状、粉状、塊状の何れかの状態である尿素－アルデヒド縮合物に、く溶性リン酸含有物質を添加、混合することによって得ることができる。その際に使用する尿素－脂肪族アルデヒド縮合物は、く溶性リン酸含有物質の分散性の面から粉状であることが好ましい。

【 0 0 2 6 】

一方、尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に添加混合するく溶性リン酸含有物質は微粒状である方が混合における均一性の面では好ましい。反面、その場合、土壤中で溶解しやすく、く溶性リン酸含有物質微粒子の大きさによっては尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化を必要以上に促進することがあり、く溶性リン酸含有物質はある程度の大きさの粒子である方が好ましい。土壤中におけるく溶性リン酸含有物質の溶解速度はその種類や結晶構造等によって異なることから、く溶性リン酸含有物質の粒子径は一概に限定することは困難であるが、通常0.15～2mmの範囲であれば、製造、無機化促進効果のバランスが良好である場合が多い。

【 0 0 2 7 】

本発明の肥料の形状は特に限定されるものではなく、粉状、粒子状、棒状、および板状などの何れの形状であっても良いが、保存性、施肥時の取り扱いの面から粒子状であることが好ましい。

【 0 0 2 8 】

本発明の肥料が粒子状である場合、その粒径は特に限定されるものではないが、1～50 mmの範囲であることが好ましく、より好ましくは1.5～50 mmの範囲である。該粒径が1 mm以上の場合であれば本発明の効果が顕著であり、50 mmを超えるときは施肥時の取り扱いが困難となる場合がある。

【 0 0 2 9 】

本発明の肥料を粒子状とする場合の製造方法としては、転動造粒法、圧縮型造粒法、攪拌型造粒法、押出造粒法、破碎型造粒法、流動層および流動層多機能型造粒法、噴霧乾燥造粒法、真空凍結造粒法、液中造粒法等を挙げることができる。本発明においてはその中でも、転動造粒法、圧縮型造粒法、攪拌型造粒法、および押出造粒法を好ましい製造方法として挙げることができる。

【 0 0 3 0 】

【実施例】

以下実施例によって本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により限定されるべきものではない。尚、以下の実施例における「%」は特に断りがない限り「重量%」である。

1. 肥料の製造（実施例1～9、比較例1の製造）

表1に示した肥料原料をそれぞれの配合割合に基づいて混合し、これに水を加えたものを、ニーダーを用いて混合し、く溶性リン酸・CDU混合物（以下「CDU混合物」と記述する。）を作成した。水の量はCDU混合物中の水分が20%になる量とした。CDU混合物中のく溶性リン酸および水溶性リン酸の含有割合を表2に示した。

【 0 0 3 1 】

該CDU混合物をスクリー押出式造粒機（スクリーン径3.0 mmφ）を用いて押出造粒し粒子状肥料を得た。該粒子状肥料を回転円盤式整粒機（不二パウダル製、マルメライザーQJ400）に3 kg供給し、下記運転条件で、平滑化処理を行った。処理後、熱風循環乾燥機を用い100℃の条件下で6時間乾燥し、更に、振動篩で分級して2.36～3.35 mmの粒子状の肥料（実施例1～9、比較例1）を得た。

【 0 0 3 2 】

回転円盤整粒機運転条件

運転方式 : 回分式

運転時間 : 3 m i n

目皿ピッチ : 1 m m

回転数 : 7 8 8 r / m i n

仕込量 : 3 k g (1 回当たり)

【 0 0 3 3 】

【表 1】

	肥料原料 (重量比)			
	CDU	熔成リン肥	重焼リン	硫加
実施例 1	1 0 0	0.025	-	-
実施例 2	1 0 0	0.05	-	-
実施例 3	1 0 0	0.5	-	-
実施例 4	1 0 0	5	-	-
実施例 5	1 0 0	25	-	-
実施例 6	1 0 0	35	-	-
実施例 7	1 0 0	5	1.6	-
実施例 8	1 0 0	5	2.3	-
実施例 9	1 0 0	5	-	10
比較例 1	1 0 0	-	-	-

【 0 0 3 4 】

熔成リン肥 : 南九州化学工業 (株) 製 くみあい熔リン 2 0 - 1 5 - 2 0 (0

. 5 m m の篩いを通り、 1 5 0 μ m の篩いを通らないもの)

重焼リン : 小野田化学工業 (株) 製 4 6 重焼リン (0 . 5 m m の篩いを通り、

1 5 0 μ m の篩いを通らないもの)

CDU : チッソ (株) 製 2 - オキソー 4 - メチルー 6 - ウレイドヘキサヒドロ

ピリミジン紛粒体 (1 5 0 μ m の篩いを通ったもの)

硫加 : 和光純薬工業 (株) 製 特級 硫酸カリウム

【 0 0 3 5 】

【表 2】

	CDUに対するく溶性リン酸および水溶性リン酸の含有割合（重量比）※1	
	く溶性リン酸	水溶性リン酸
実施例 1	0.005	-
実施例 2	0.01	-
実施例 3	0.1	-
実施例 4	1	-
実施例 5	5	-
実施例 6	7	-
実施例 7	1	0.48
実施例 8	1	0.69
実施例 9	1	-
比較例 1	-	-

※ 1 CDUを100としたときの重量比

【 0 0 3 6 】

2. 土壌中における無機化率測定試験

2 L 容の容器に 2 mm の篩いを通った風乾土壌（黒ボク土、未耕地土壌）を 1 kg 入れ、そこに実施例 1 ～ 9、比較例 1 の肥料を全窒素で 1.0 g 相当量、水を最大容水量の 60 % になるように入れ混合し無機化土壌サンプルを作成した。

該無機化土壌サンプルが入った容器の上縁をポリエチレンフィルムで覆い 30 ℃ の恒温室に静置した。所定の期間経過後に土壌を全て回収し、よく混合した後、そのうち 10 g を採取した。

採取した土壌中の無機態窒素量をアンモニア態、亜硝酸態、硝酸態窒素の同時浸出測定法（養賢堂 土壌養分測定法 p 197 - p 200 に記載の方法）で測定した。

【 0 0 3 7 】

試験は全て 3 反復制とし、供試土壌に元来含まれていた無機態窒素量を測定するために、粒子状肥料を施用していない試験区も設けた。このような操作を反復して無機化した窒素量と日数の関係をグラフ化して無機化率曲線を作成し、施用後 10 日目、20 日目、30 日目、60 日目の 1 日あたりの無機化率を求め表 3 に示した。この表における 1 日あたりの無機化率とは

無機化率（％）＝無機化土壌サンプル全量における（ $n-1$ ）日目から n 日目までの 1 日間に無機化した窒素量／施用前の粒子状肥料に含まれる窒素量 $\times 100$

n ：施用後日数

で求めた値である。

【0038】

【表 3】

	10 日目	20 日目	30 日目	60 日目
実施例 1	1.9	1.0	0.3	0.2
実施例 2	1.9	1.1	0.5	0.3
実施例 3	2.0	1.1	0.8	0.8
実施例 4	2.6	2.3	2.0	-
実施例 5	3.2	2.8	2.5	-
実施例 6	3.3	2.7	2.4	-
実施例 7	3.0	2.7	2.8	-
実施例 8	4.2	2.0	1.3	-
実施例 9	2.5	2.3	2.1	-
比較例 1	1.9	0.9	0	0

【0039】

表 3 に示した結果から、本発明の肥料であれば、一定期間後の無機化速度の低下を緩和することが可能であることが確認された。さらに、含有する可溶性リン酸の量は尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して 0.01～5％が望ましく、水溶性リン酸の含量は尿素－脂肪族アルデヒド縮合物に対して 0～0.5％が望ましいことが確認された。

【0040】

【発明の効果】

本発明の肥料は、全肥効期間に亘って尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化速度が低下しにくい。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 全肥効期間に亘って尿素－脂肪族アルデヒド縮合物の無機化速度が低下しにくい肥料の提供。

【解決手段】 尿素－脂肪族アルデヒド縮合物とを有する肥料に、く溶性リン酸を含有させる。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002071]

1. 変更年月日 1990年 8月23日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市北区中之島3丁目6番32号
氏 名 チッソ株式会社